基研研究会「有限量子多体系の励起構造と相関効果」(3-5 Dec. 2001) 報告
物性研究 **78**, 236-243 (2002).

量子ドット—「電子分子」から「量子液滴」まで

青木秀夫
東京大学大学院理学系研究科
email: aoki@phys.s.u-tokyo.ac.jp

1 はじめに

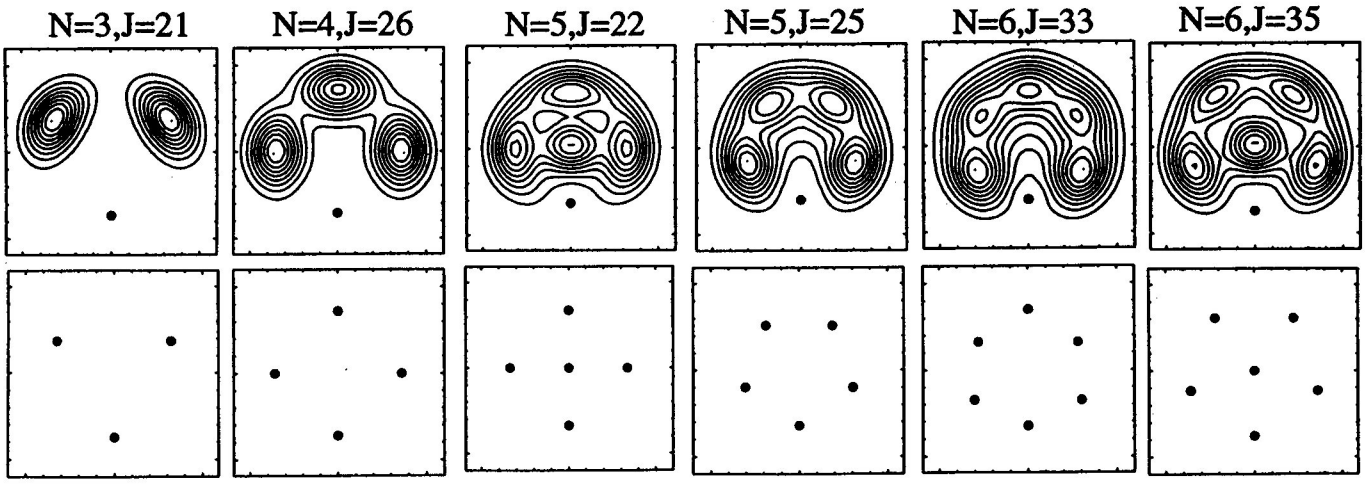
電子を数個しか含まない量子ドットは最近の技術で作成可能になっているが、ここで電子間の斥力相互作用の効果がどのように効くかに興味がもたれる。特に、強磁場をかけると、ランダウ量子化のために電子相関が強くなり、これは、バルクでは分数量子ホール状態（量子液体状態）やWigner solidなどをとる系のドット版といってもよい。有限量子多体系への導入として本講演では、電子が少数で磁場が十分強い場合、電子は斥力により避け合い、「電子分子」構造をもつ、という現象を解説した。つまり、原子核もないのに、斥力のために自発的に構造をもち、全角運動量が特定の「魔法数」でエネルギーが安定化する、という原子核のshell構造のような現象が起きる。このとき、電子はパウリの排他律を満たしながら分子的配置をとり、この周りに量子零点振動をしながら回転する分子という描像でとらえ得る。魔法数は、分子的配位のために系のとり得る量子数に群論的な制限がつくために発生する。以上においては、系はいわば「Wigner cluster」（Wigner solidの破片）であるが、状況によっては、「量子液滴 (quantum liquid droplet)」(零点振動のために固化が阻止されている量子液体の雫）が生じる場合もある。

また、このような場合も含めてより一般的に、「有限系における対称性の破れとは何か」という基本的な問題がある。これが、本講演の第二の目的である。このような物理を、歴史的背景も含めoverviewした。

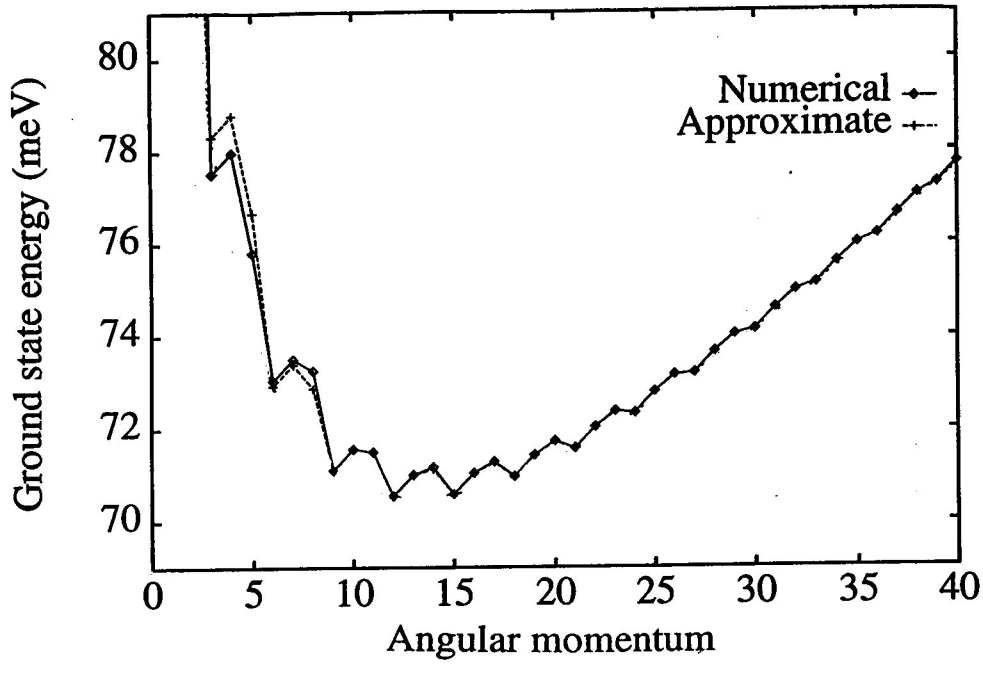
2 量子ドット

有限系としては、ヘリウム液滴、トラップ中の原子のBose-Einstein condensateや、無論原子核などが典型例であるが、固体物理においてはナノメーター・サイズの半導体（量子ドット）が代表例となる。これは、異種の半導体を接合して、これを塔状に削る (mesa etch)、あるいは電極板に構造を作ることにより、界面の有限領域に電子を束縛させたものである。例えばここに電子を二個入れると、「量子ドット・ヘリウム」となる。この波動関数を求めると、電子間斥力のために電子は避け合い、電子相関が大事なことは明らかである。電子相互作用の強弱の尺度としては、直径aの有限系でのクーロン相互作用(e^2/a)と離散準位間隔$(\hbar\omega_0)$の比をとることができる。NTT試料のように$\hbar\omega_0 \sim$ meVでは強相関$(e^2/a \gg \hbar\omega_0)$となる。

この系に強磁場$(B \sim 10$ T)をかけると（つまりバルクでは分数量子ホール効果[1]が起きる状況にすると)、磁場によるランダウ量子化のせいで、電子相関はさらに強くなる。調和ポテンシャル中の電子のランダウ量子化はFock-Darwinにより解かれている。これに電子間相互作用を入れた系を厳密対角化により解くと、基底状態では3電子は正三角形的配置、4電子で正四角形、… をとることがMaksym等により示された。これを「電子分子」(electron molecule)と呼ぶ(図1(a))[2, 3, 4]。つまり、普通の分子では重い原子核の周りに1/2000軽い電子が束縛され、この原子間の結合により分子ができるが、今の場合は、電子だけが自発的に特定の配置



(a)



(b)

図 1 (a) 強磁場 ($B = 20$ T) 中の円形の量子ドット中の $N = 3, ..., 6$ 電子に対する、基底状態波動関数〈上列〉と古典的電荷配置（下列）[3]。系には軸対称性があるので、全電荷密度も軸対称。多体波動関数を、ここでは或る電子（全電荷密度のピークに対応する動径上の黒点）から見た他電子の確率密度としてプロット。

(b) 円形の量子ドットに 3 電子がいる場合の、全角運動量の各値に対する最低エネルギーの軌跡 [3]。実線で結ばれた丸は厳密対角化の結果、点線は「電子分子」理論の結果。

をとる。

このような「電子分子」は、円形のドットでは全体として回転しているので、全角運動量量子数Lをもつが、ここに「魔法数」があらわれる。つまり、系のエネルギーをLに対してプロットすると奇妙な周期的な下向きのカスプが現れる (図1(b))。これは3電子で$L = 3, 6, 9, 12, ...$, 4電子で$L = 6, 10, 14, 18, ...$という風に、電子数をNとしてN間隔となっている。これが、電子がパウリ排他律を満たしながら分子的配置をとる際に、電子分子の振動量子も含めた量子数に群論的な制限がつくためであることを示せる。つまり、量子ドット中の電子は、古典的荷電粒子としての配置から出発して、量子効果—零点振動とフェルミオンの統計性による波動関数の完全反対称化—を入れることで構成できる。近似は電子が実際に入れ替わる量子力学的トンネリング的に小さい確率を無視したことであるが、結果的に大変良い近似になっている。電子分子を扱うには、分子に乗った回転座標を採用すると便利である。運動エネルギーは座標と運動量の絡んだCoriolis項も含むが、平衡位置周りの振動を調和展開することができる。

量子力学に行くにはPodolsky procedureをとるが、振動はフォノンに量子化され、全波動関数$e^{-iL\chi} f_{\rm vib}\psi_{\rm spin}$($\chi$は分子の回転角、$f_{\rm vib}$はフォノン波動関数、$\psi_{\rm spin}$はスピン波動関数）を反対称化する。古典平衡配置が$m$回対称性（$2\pi/m$回転して元に戻る）を持っているときには、群論から、

$$L + k_s \equiv \begin{cases} 0 \bmod m, & m \text{ 奇数} \\ m/2 \bmod m, & m \text{ 偶数} \end{cases} \tag{1}$$

という魔法数条件を満たすと、フォノンを励起しない状態が全体の基底状態となる（条件を満たさないと、反対称化にはフォノン励起が必要）となる事が分かる。実際、系のエネルギーを、全角運動量のそれぞれの値に対する最低エネルギーをプロット（原子核物理で謂うところのYrast spectrum)をすると、厳密対角化と電子分子理論の結果（図1(b)の実線と点線）は驚くほどよく一致する。

一致は励起状態やスピン自由度（量子数k_sの絡む）に対しても良好で[3, 5]、強相関の物理で議論される共鳴バレンス結合(RVB)状態も現れる（図2)。

以上の話で「強磁場」ということがどこに効いているかというと、古典配置の周りの振動に調和近似をしたが、振動は磁気長ℓ程度の振幅をもっているので、磁場が強くなってℓと電子間隔との比が小さくなる程調和近似が良くなる訳である。

実験的には、磁場を変化させると魔法数が跳ぶので、これを光学吸収で検出する、あるいは系の状態をドットに電子を1個づつ注入して調べるスペクトル(Coulomb diamond)により検出することが試みられつつある。

電子数を増やした場合は多数の状態がほぼ縮退して現われるが、興味深いことに、特定の場合にはこれらの状態間が量子力学的に混成許容となり（図3)、この場合とはランダウ準位占有率が奇数分の1（バルクでは分数量子ホール効果が現われる条件）と一致する。

この意味で、電子分子として議論したのはランダウ準位占有率νが簡単な分数でない場合のWigner solidのかけらであるが、この他にバルクでは分数量子ホール液体（$\nu = 1/$奇数）やフェルミ液体（1/偶数）が知られており、この場合に対応する有限系状態も興味深い。有限フェルミ液体の場合（$\nu = 1/2$）について詳述する紙幅はないが、この場合の"Yrast spectrum"の例を図4に示す[6]。この図は、複合フェルミオン理論[1, 7]が良い描像という例証の一つとなる。

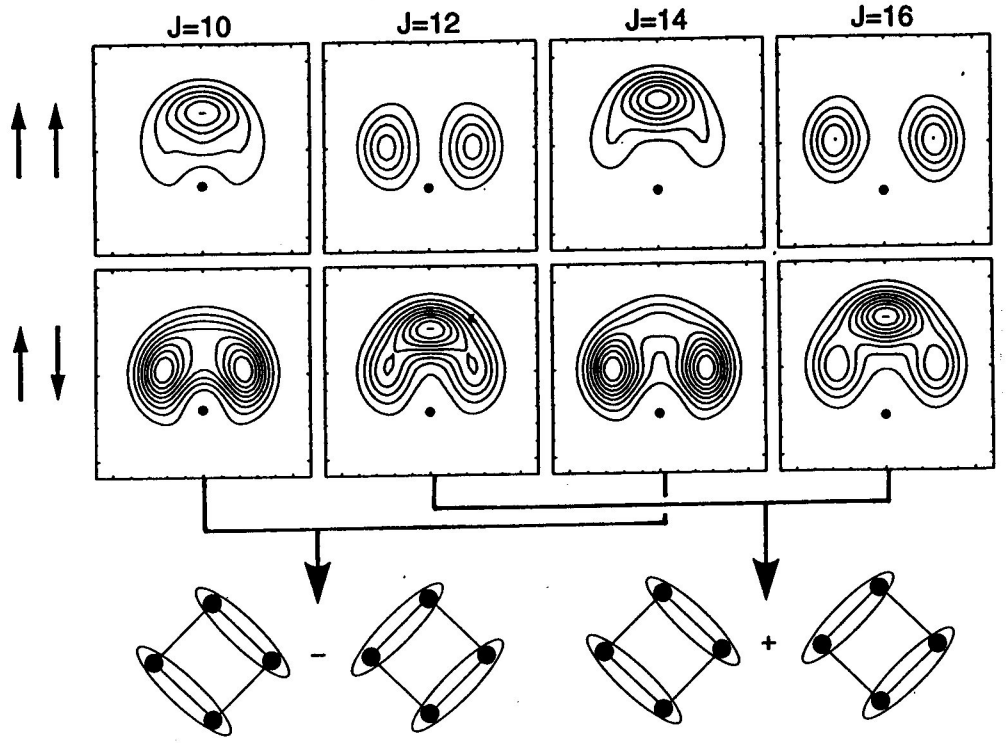


図 2 スピン自由度を考えたときの波動関数。上向きスピンをもつ電子（黒丸）から見た同じ向きスピン（上列）あるいは反対向きスピン（中列）の電子の確率密度を、全角運動量 $J = 10, ..., 16$ に対してプロット [3]。下列は、対応する resonating valence bond (RVB) 状態、楕円は spin singlet。

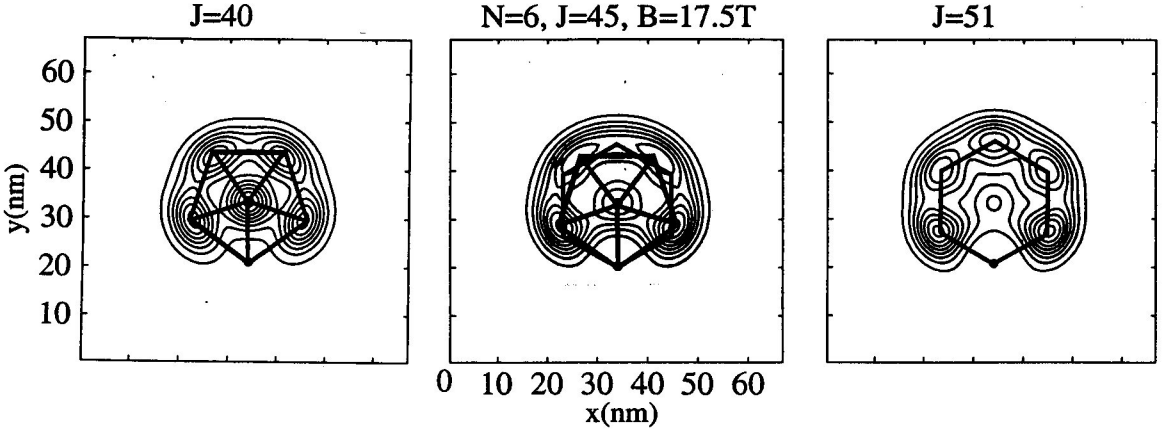


図 3 6 電子量子ドットに対する全角運動量 $J = 40$（五角形+中心電子）、$J = 45$（液滴）、$J = 51$（六角形）に対する最低エネルギー波動関数 [3]。

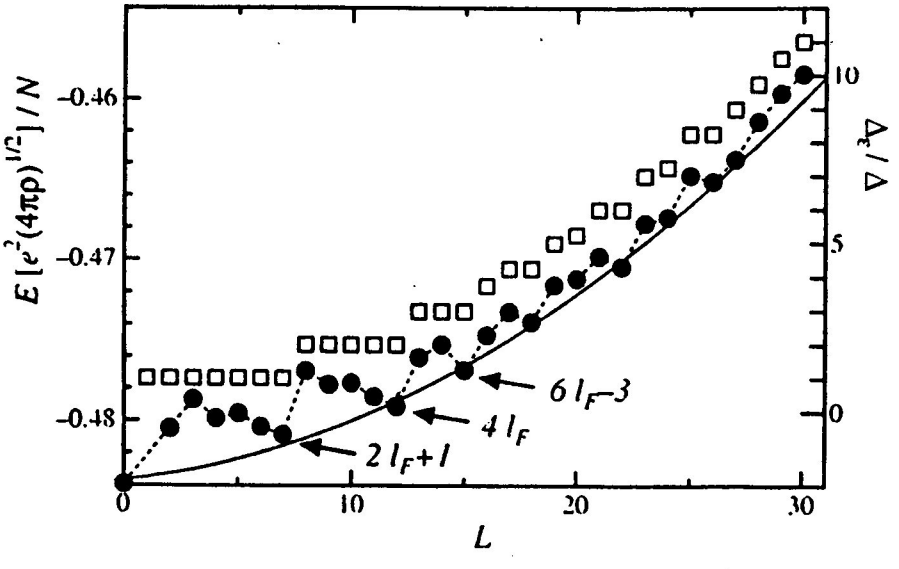


図 4 ランダウ準位占有率 $\nu = 1/2$ に対する、有限系 (16 電子) の、角運動量 L の各値に対する最低エネルギーの軌跡 [6]。厳密対角化の結果 (•) と、自由な複合フェルミオンの予言する結果 (□) を比較。

3 有限系における対称性の破れ

以上のように、有限系において色々な相を考える際に発生する原理的な問題として、有限系においては対称性の破れとは何なのか、という問題がある [8]。例えば、超流動ヘリウムの液滴を考えたときに、巨視的な液滴なら、超流動状態への量子相転移（ゲージ対称性の破れ）が起きている。この液滴をどんどん小さくするとどうなるか。統計力学では、相転移は熱力学極限（粒子数 N が無限大の極限）でのみ起きる熱力学関数の特異性であると説くから、これを文字通り受け取ると有限系では超流動（一般に二次相転移）という概念は意味を失うことになる。しかし、現実には $N = 10^{23}$ なら相転移は起きていると思ってよい。この N を減らしたときに、何か臨界個数のようなものがあるであろうか。

本研究会の柱の一つである、レーザー・クーリングによって実現する数百個の原子の Bose-Einstein condensation(BEC) のような系においては、この問題は決して机上の空論ではない。量子ドットの観点からも面白い。例えば、分数量子ホール効果という量子液体状態は、強い電子相関のために (2+1) 次元における Chern-Simons ゲージ対称性が破れた状態であり、超流動や超伝導と同様に、非対角長距離秩序で特徴付けられる。すると、強磁場中の量子ドットにおいて、量子液滴となる条件下では、やはり少数多体系で非対角長距離秩序は意味をもつか、という問題を設定することができる。この点について、以下の 3 点を指摘した。

- 非対角長距離秩序を議論した Yang の論文 [9] にたちかえると、非対角長距離秩序が定量的に定義されており、これは系の密度行列の最大固有値が N のオーダーになることとして定義される。有限系でもこれが目安になるはずであろう。
- 具体的に超伝導に対しては、厳密に解ける模型の例が 40 年近く前に Richardson により提案されている [10]。これは、電子間相互作用に特殊な仮定をして、k 空間で電子の Cooper pair が別の位置の pair に散乱されるという行列要素だけを取り入れた模型 (pairing model) である。こうすると、模型はペアの生成消滅演算子だけで書け、その代数構造が Gaudin 模型という可解模型と似るようになり、これは有限系で可解となる。BCS ギャップ関数も存在する。つまり、普通は BCS ギャップはゲージ対称性の破れと結びつけられ、grand canonical 集団における BCS 状態が電子数不定であるから位相が確定してゲージ対称性が破れる、と説かれるが、実は BCS 状態とそれを電子数一定とした射影との差は殆どなく ($\sim 1/N$)、実際ギャップ関数も電子数一定とした（canonical）集団でも定義できることが知られている [11]。但し、系があまりにも小さくなると BCS 状態は意味を失い、その臨界の大きさは、有限サイズのため離散的になるエネルギー準位の間隔がギャップ関数の大きさと同程度になるところである (図 5)。

実際、高温超伝導の電子模型に対して、有限系で（量子モンテカルロ等の）計算を行うと、準位間隔が十分小さい場合には、確かにペアリング振幅の二点相関が長距離となるという結果が得られている (図 6)[12]。実験的にも、金属 nanoparticle において、ギャップが観測されている [13]。

超流動に関しては、超流動に必要なロトン極小が $N > 70$ 程度で初めて発生する、という実験結果 [14] がある。超流動性そのものについては、ヘリウム液滴の中心に別の分子を閉じ込めた系で、やはり $N > 60$ 程度で始めて分子が自由になり固有の IR 吸収スペクトルを示す、という実験 [15] もあるので、何か別の臨界 N 値があるようである。ヘリウムは良く知られているように硬い芯 (hard core) 相互作用を持つので、この特殊性かもしれない。

- 別の統計力学的なアプローチでは、高麗・田崎により、次のようなことが定式化されている [16]。超流動や超伝導は特殊かもしれないので、ごく普通のスピン系における磁気相転移（強磁性や反強磁性への転移）、例えば反強磁性ハイゼンベルク模型を考えよう。すると、有限

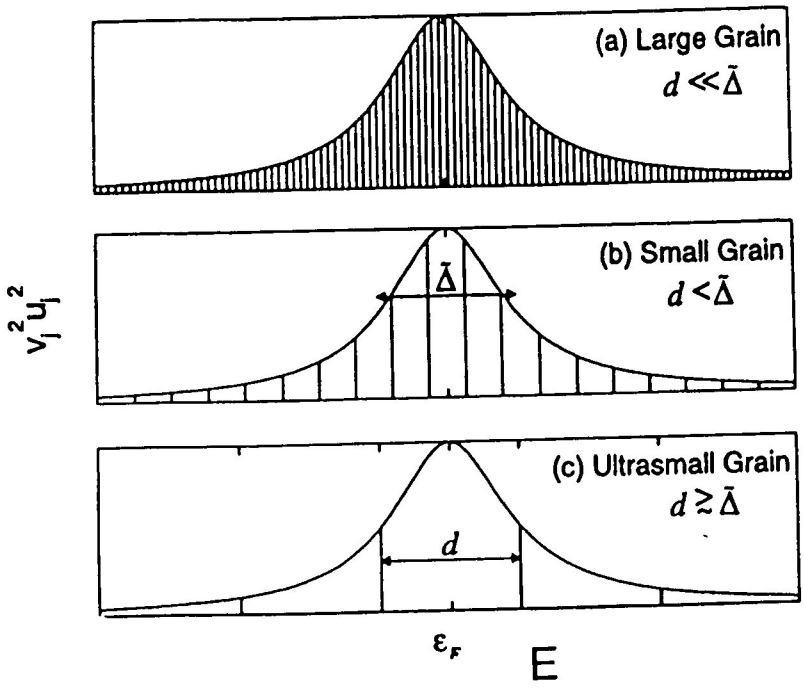


図 5 有限な超伝導体における、BCS 波動関数を特徴付ける $v_i^2 u_i^2$ のエネルギー依存性を、d（離散エネルギー準位の間隔）$\ll \Delta$(BCS ギャップ関数) (a)、$d \simeq \Delta$ (b)、$d > \Delta$ (c) の場合に示す [11]。

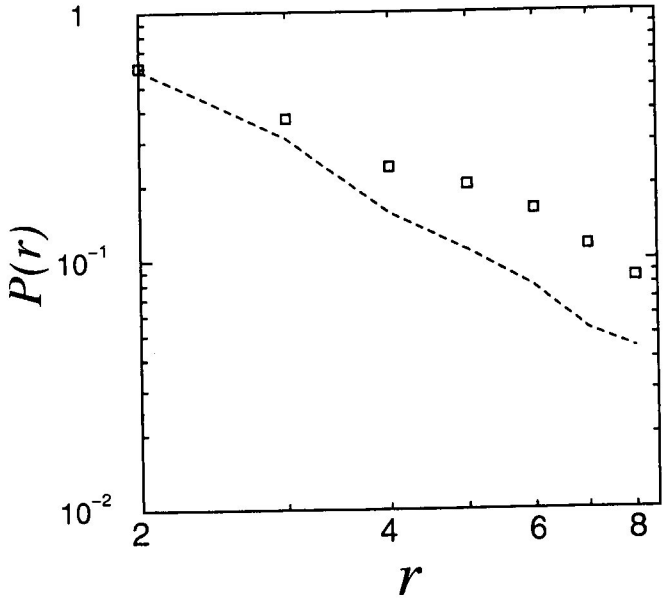


図 6 超伝導を示す電子相関模型（斥力 Hubbard model）の、Cooper pairing の二点相関関数を、実空間距離の関数として表す [12]。有限系 (100 原子上に 78 電子) に対する量子モンテカルロ結果（白丸）と、自由電子の結果（点線）。

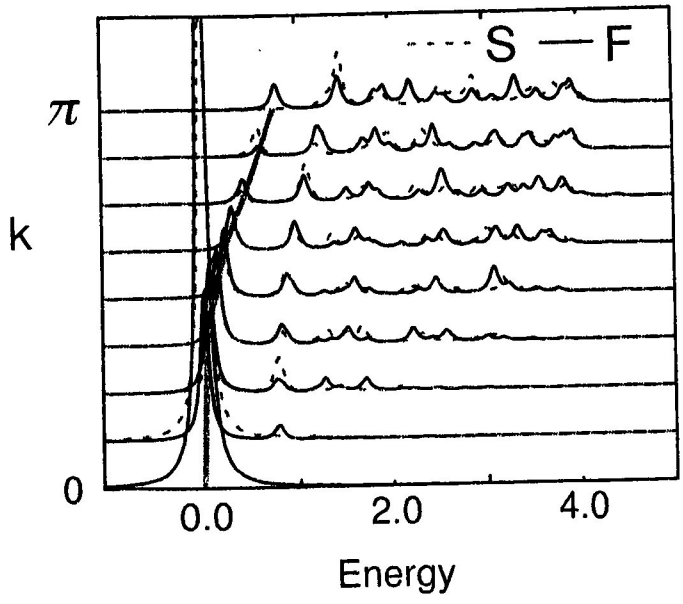


図 7 Spiral spin state を基底状態としてもつ電子相関模型 (1D $t-t'$ Hubbard model) の、dynamical spin correlation function $S(k,\omega)$ を、様々な k に対して ω の関数として示す [18]。有限系 (12 電子系) に対する spiral 状態（点線）、強磁性状態（実線）の結果。強磁性スピン波的モードをグレーの線で示す。

サイズのスピン系では、Marshall-Lieb-Mattis の定理により、反強磁性は無い（副格子磁化はゼロとなる）ことが厳密証明できる [17]。これを無限系の極限にそのまま適用すると、反強磁性相転移は存在しないことになるが、無限系・絶対零度では対称性が破れるはずである。高麗・田崎が示したのは、無限系の極限では、沢山の状態が基底状態にエネルギー的に接近（エネルギーの差が $1/N$ でゼロになるように）してきて、無限の極限ではこれらの沢山の状態の線形結合で対称性が破れた状態が構成される、ということである。

このような状況を認識することは、有限系の数値計算から磁気相図を出そうとすると避けられない点である。例として、強磁性に有利な構造をもつ擬 1 次元的な電子系モデルでは、揃ったスピンが系のサイズで捩れた「スパイラル状態」という SU(2) 対称状態が存在し、無限系極限では上の状態が混ざってきて SU(2) が破られることが示される [18]。

別の観点としては、対称性が自発的に破れると、その代償として南部・Goldstone モードが立つから、このモードの様子を議論することもできる。面白いことに、上述の spiral 状態 (SU(2) は破れていない）ですら、南部・Goldstone に対応するモードをもつ（図 7）[18]。

4 おわりに

以上のように、有限量子多体系における構造、性質、対称性、スペクトルなどは面白い問題であり、open question も沢山ある。本研究会のような学際的な交流により、この理解が進むことが期待される。例えば、分数量子ホール効果の理解の一つとして「複合粒子」(Chern-Simons ゲージ場理論）があるが、ゲージ場の入れ方にあいまい性もあり、これを何か operator algebra で記述することも望まれるが、BEC に対して最近 operator 展開法 [19] が提案されていることが思い出される。

本研究は、電子分子については Peter A. Maksym, 今村裕志、量子液滴については小野田勝、水崎高浩、大塚孝治、spiral 状態については有田亮太郎の各氏との共同研究および議論に基づいている。

参考文献

[1] 中島龍也、青木秀夫：「分数量子ホール効果」（青木秀夫監修：多体電子論、第 III 巻；東京大学出版会、1999)。

[2] 今村裕志、青木秀夫、Peter A. Maksym：日本物理学会誌、**53**, 36 (1998)。

[3] P.A. Maksym, H. Imamura, G. Mallon and H. Aoki: Molecular aspects of electron correlation in quantum dots, *J. Phys. Condensed Matter* **12**, R299 (2000).

[4] H. Aoki: in *Interactions and Quantum Transport Properties of Lower Dimensional Systems* ed. by T. Brandes (Springer Series 'Lecture Notes in Physics', Springer, 2000), p. 167.

[5] H. Imamura, H. Aoki and P.A. Maksym: Phys. Rev. B **57**, R4257 (1998).

[6] Masaru Onoda, Takahiro Mizusaki, Takaharu Otsuka, and Hideo Aoki: Phys. Rev. Lett. **84**, 3942 (2000).

[7] H. Aoki: in *Dynamics of Gauge Fields* ed. by A. Chodos et al. (Universal Academy Press, 2000), p. 371.

[8] 青木秀夫、数理科学、2002年2月号, p.31。

[9] C.N. Yang, Rev. Mod. Phys. **34**, 694 (1962).

[10] R.W. Richardson, Phys. Lett. **3**, 277 (1963). この最近の一般化は、J. Dukelsky et al., Phys. Rev. Lett. **87**, 066403 (2001).

[11] J. von Delft and D.C. Ralph, Phys. Rep. **345**, 61 (2001).

[12] K. Kuroki and H. Aoki: Phys. Rev. Lett. **76**, 4400 (1996); Phys. Rev. B **56**, R14287 (1997).

[13] D.C. Ralph, C.T. Black and M. Tinkham, Phys. Rev. Lett. **74**, 3241 (1995).

[14] M.V. Ramakrishna et al., Phys. Rev. Lett. **64**, 1126 (1990).

[15] S. Grebenev et al., Science **279**, 2083 (1998).

[16] T. Koma and H. Tasaki, J. Stat. Phys. **76**, 745 (1994).

[17] 草部浩一、青木秀夫：「強磁性」（青木秀夫監修：多体電子論、第I巻；東京大学出版会、1998)。

[18] R. Arita and H. Aoki, Phys. Rev. B **61**, 12 261 (2000).

[19] T. Nakajima and M. Ueda, Phys. Rev. A **63**, 043610 (2001); **64**, 063609 (2001).